

REC'D 2 7 FEB 2004

WIPO

# 日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

09. 1. 2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2003年 1月16日

出 願 番 号 Application Number:

特願2003-007762

[ST. 10/C]:

[JP2003-007762]

出 願 人
Applicant(s):

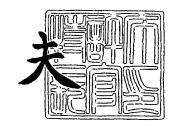
出光興產株式会社

PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2004年 2月13日

今井康





【書類名】 特許願

【整理番号】 IK12202

【提出日】 平成15年 1月16日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/00

【発明の名称】 芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロル

ミネッセンス素子

【請求項の数】 5

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県袖ケ浦市上泉1280番地

【氏名】 川村 久幸

【特許出願人】

【識別番号】 000183646

【氏名又は名称】 出光興産株式会社

【代理人】

【識別番号】 100078732

【弁理士】

【氏名又は名称】 大谷 保

【選任した代理人】

【識別番号】 100081765

【弁理士】

【氏名又は名称】 東平 正道

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003171

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0000937



【包括委任状番号】 0000761

【プルーフの要否】 要



【書類名】 明細書

【発明の名称】 芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(1)で表される芳香族アミン誘導体。

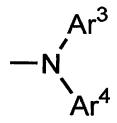
$$A-L-B \tag{1}$$

(式中、Aは、

【化1】

で表されるジアリールアミノ基、Bは、

## 【化2】



で表されるジアリールアミノ基であって、 $Ar^1 \sim Ar^4$  は、それぞれ独立に、 置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim 50$  のアリール基である。ただし、A と B は 同一ではない。

Lは、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基からなる連結基、又は、複数の置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基を単結合,酸素原子,硫黄原子,窒素原子又は飽和もしくは不飽和の核炭素数1~20の2価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。)

【請求項2】 陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、



該有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1に記載の芳香族アミン誘導体を単独 もしくは混合物の成分として含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記有機薄膜層が正孔輸送帯域を有し、該正孔輸送帯域が、 請求項1に記載の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有す る請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 前記有機薄膜層が正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、請求項1に記載の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 前記正孔輸送層が、主成分として請求項1に記載の芳香族アミン誘導体を含有する請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

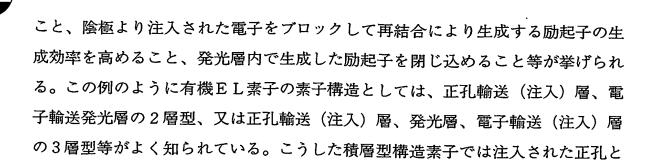
本発明は、新規な芳香族アミン誘導体及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、さらに詳しくは、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上する新規な芳香族アミン誘導体及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

[0002]

# 【従来の技術】

有機エレクトロルミネッセンス素子(以下エレクトロルミネッセンスをELと略記することがある)は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告(C.W. Tang, S.A. Vanslyke,アプライドフィジックスレターズ(Applied Physics Letters),51巻、913頁、1987年等)がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス(8ーヒドロキシキノリノールアルミニウム)を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高める





電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

通常高温環境下で有機EL素子を駆動させたり、保管すると、発光色の変化、 発光効率の低下、駆動電圧の上昇、発光寿命の短時間化等の悪影響が生じる。こ れを防ぐためには正孔輸送材料のガラス転移温度(Tg)を高くする必要があっ た。そのために正孔輸送材料の分子内に多くの芳香族基を有する必要があり(例 えば、特許文献1の芳香族ジアミン誘導体、特許文献2の芳香族縮合環ジアミン 誘導体、特許文献3のテトラフェニルベンジジン化合物)、通常8~12個のベ ンゼン環を有する構造が好ましく用いられている。

しかしながら、分子内に多くの芳香族基を有すると、これらの正孔輸送材料を 用いて薄膜を形成し、有機EL素子を作製する際に結晶化が起こりやすく、蒸着 に用いるるつぼの出口を塞いだり、結晶化に起因する薄膜の欠陥が発生し、有機 EL素子の歩留り低下を招くなどの問題が生じていた。

#### [0003]

### 【特許文献1】

米国特許4,720,432号明細書

#### 【特許文献2】

米国特許5,061,569号明細書

#### 【特許文献3】

特開平7-126615号公報

#### [0004]

### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、前記の課題を解決するためなされたもので、分子が結晶化しにくく 、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上する新規な芳香族アミン誘導体及び それを用いた有機EL素子を提供することを目的とする。



#### [0005]

### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記目的を達成するために、鋭意研究を重ねた結果、下記一般式(1)で表される非対称な構造を有する新規な芳香族アミン誘導体を有機EL素子用材料として用い、特に正孔輸送材料として用いると、前記の課題を解決することを見出し、本発明を完成するに至った。

### [0006]

すなわち、下記一般式 (1) で表される芳香族アミン誘導体を提供するものである。

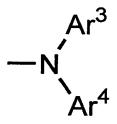
$$A-L-B$$
 (1)

(式中、Aは、

### 【化3】

で表されるジアリールアミノ基、Bは、

## 【化4】



で表されるジアリールアミノ基であって、 $Ar^1 \sim Ar^4$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim 50$  のアリール基である。ただし、A と B は 同一ではない。

Lは、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基からなる連結基 、又は、複数の置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基を単結合



,酸素原子,硫黄原子,窒素原子又は飽和もしくは不飽和の核炭素数1~20の 2価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。)

### [0007]

また、本発明は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機EL素子を提供するものである。

### 【発明の実施の形態】

本発明の芳香族アミン誘導体は、下記一般式 (1) で表される化合物からなる ものである。

$$A - L - B \tag{1}$$

一般式(1)において、AとBは同一ではない。すなわち、本発明の芳香族アミン化合物は、非対称な構造を有している。

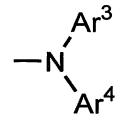
### [0009]

一般式(1)において、Aは、

#### 【化5】

で表されるジアリールアミノ基、Bは、

### 【化6】





で表されるジアリールアミノ基であって、 $Ar^1 \sim Ar^4$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim 50$  のアリール基である。

## [0010]

 $Ar^1 \sim Ar^4$  のアリール基としては、例えば、フェニル基、1ーナフチル基 、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、 1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フ ェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニ ル基、9ーナフタセニル基、1ーピレニル基、2ーピレニル基、4ーピレニル基 、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニルー4-イル基、p-ターフェニルー3-イル基、p-ターフェニル -2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基 、mーターフェニルー2ーイル基、oートリル基、mートリル基、pートリル基 、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチルー2ーナフチル基、4ーメチルー1ーナフチル基、4ーメチルー1ーアン トリル基、4'ーメチルビフェニルイル基、4"ーtーブチルーpーターフェニー ルー4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニ ル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリ ル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリ ル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、 4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イ ソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベ ンゾフラニル基、4ーベンゾフラニル基、5ーベンゾフラニル基、6ーベンゾフ ラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾ フラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソ ベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリル基、 4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノ リル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル



基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1 ーカルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリ ル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニ ル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンス リジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェ ナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-ア クリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基 、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イ ル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5 ーイル基、1,7ーフェナンスロリンー6ーイル基、1,7ーフェナンスロリン -8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロ リン-10-イル基、1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8-フェナ ンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フ ェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6-イル基、1,8 -フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9-イル基、1 , 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル 基、1、9-フェナンスロリン-3-イル基、1、9-フェナンスロリン-4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナンスロリ ン-8-イル基、1,9-フェナンスロリン-10-イル基、1,10-フェナ ンスロリン-2-イル基、1,10-フェナンスロリン-3-イル基、1,10 ーフェナンスロリンー4ーイル基、1,10ーフェナンスロリン-5ーイル基、 2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル 基、2,9-フェナンスロリン-4-イル基、2,9-フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-6-イル基、2,9-フェナンスロリン-7-イル基、2,9-フェナンスロリン-8-イル基、2,9-フェナンスロリ ン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、2,8-フェナン スロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロリン-4-イル基、2,8-フェ ナンスロリン-5-イル基、2,8-フェナンスロリン-6-イル基、2,8-



フェナンスロリンー7ーイル基、2,8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2,7-フェナンスロリン-1-イル基 、2, 7-フェナンスロリンー3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イ ル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6 ーイル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン- 10 - イル基、1 - フェナジニル基 、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3 ーフェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、 1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、 4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4 ーオキサゾリル基、5ーオキサゾリル基、2ーオキサジアゾリル基、5ーオキサ ジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチ ルピロールー1ーイル基、2ーメチルピロールー3ーイル基、2ーメチルピロー ルー4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、 3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロールー1-イル基、2-メチルー1-インドリル 基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチ ルー3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基、4-t-ブチル3-インドリ ル基等が挙げられる。

これらの中で、好ましくはフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、フルオレニル基である。

# [0011]

一般式(1)において、Lは、(I)置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim50$  のアリーレン基からなる連結基、又は、(II)複数の置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim50$  のアリーレン基を(II-1)単結合,(II-2)酸素原子(-O-),(II-3)硫黄原子(-S-),(II-4)窒素原子(-NH-,-NR- [Rは置



換基]) 又は(II-5) 飽和もしくは不飽和の核炭素数1~20の2価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。

### [0012]

前記(I)及び(II)における核原子数  $5 \sim 50$ のアリーレン基としては、例えば、1, 4-フェニレン基、1, 2-フェニレン基、1, 3-フェニレン基、1, 4-ナフチレン基、2, 6-ナフチレン基、1, 5-ナフチレン基、9, 10-アントラニレン基、9, 10-アントラニレン基、1, 6-ピレニレン基、1, 6-ピレニレン基、1, 6-ピレニレン基、1, 1-ピフェニレン基、1, 1-ピン

# [0013]

前記(II-5)における飽和もしくは不飽和の核炭素数 1~20の2価の脂肪族炭化水素基としては、直鎖,分岐,環状のいずれであってもよく、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、エチリデン基、シクロヘキシリデン基、アダマンチレン基等が挙げられる。

# [0014]

 $Ar^1 \sim Ar^4$  及びLの置換基としては、置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim 50$ のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数  $1\sim 50$ のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数  $1\sim 50$ のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数  $1\sim 50$ のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim 50$ のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim 50$ のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数  $1\sim 50$ のアルコキシカルボキシル基、置換もしくは無置換の炭素数  $1\sim 50$ のアルコキシカルボキシル基、置換もしくは無置換の核原子数  $5\sim 50$ のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基等である。





#### [0015]

置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基の例としては、フェニル 基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、 9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナ ントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル 基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル 基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフ ェニルイル基、p-ターフェニルー4-イル基、p-ターフェニルー3-イル基 、 p ーターフェニルー 2 ーイル基、mーターフェニルー 4 ーイル基、mーターフ ェニルー3-イル基、m-ターフェニルー2-イル基、o-トリル基、m-トリ ル基、pートリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル )フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4 ーメチルー1ーアントリル基、4'ーメチルビフェニルイル基、4"ーtープチ ルーp-ターフェニルー4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、1 -ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニ ル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリ ル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリ ル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソイ ンドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾ フラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニ ル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル 基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフ ラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基 、3ーキノリル基、4ーキノリル基、5ーキノリル基、6ーキノリル基、7ーキ ノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イ ソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基 、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キ ノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル



基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2 ーフェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル 基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリ ジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アク リジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、 9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナ ンスロリンー3ーイル基、1,7ーフェナンスロリンー4ーイル基、1,7ーフ ェナンスロリンー5ーイル基、1,7ーフェナンスロリンー6ーイル基、1,7 ーフェナンスロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9-イル基、1 ,7-フェナンスロリンー10-イル基、1,8-フェナンスロリンー2-イル 基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6-イル基、1,8-フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリ ン-9-イル基、1,8-フェナンスロリン-10-イル基、1,9-フェナン スロリン-2-イル基、1,9-フェナンスロリン-3-イル基、1,9-フェ ナンスロリンー4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリンー6ーイル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1,9-フェナンスロリン-10-イル基 、1、10-フェナンスロリンー2-イル基、1、10-フェナンスロリン-3 ーイル基、1,10-フェナンスロリンー4-イル基、1,10-フェナンスロ リンー5ーイル基、2,9ーフェナンスロリンー1ーイル基、2,9ーフェナン スロリン-3-イル基、2,9-フェナンスロリン-4-イル基、2,9-フェ ナンスロリンー5ーイル基、2,9ーフェナンスロリンー6ーイル基、2,9ー フェナンスロリンー7ーイル基、2,9ーフェナンスロリンー8ーイル基、2. 9-フェナンスロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基 、2,8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロリン-4-イ ル基、2,8-フェナンスロリン-5-イル基、2,8-フェナンスロリン-6 -イル基、2,8-フェナンスロリン-7-イル基、2,8-フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン- 10 - イル基、2, 7 - フェナンス



ロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナ ンスロリン-4-イル基、2,7-フェナンスロリン-5-イル基、2,7-フ ェナンスロリンー6ーイル基、2,7ーフェナンスロリンー8ーイル基、2,7 ーフェナンスロリンー9ーイル基、2,7ーフェナンスロリン-10ーイル基、 1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェ ノチアジニル基、3ーフェノチアジニル基、4ーフェノチアジニル基、10-フ ェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フ ェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4ーオキサゾリル基、5ーオキサゾリル基、2ーオキサジアゾ リル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チ エニル基、2ーメチルピロールー1ーイル基、2ーメチルピロールー3ーイル基 、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メ チルピロールー1ーイル基、3ーメチルピロールー2ーイル基、3ーメチルピロ ールー4-イル基、3-メチルピロールー5-イル基、2-t-ブチルピロール -4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチ ルー1ーインドリル基、4ーメチルー1ーインドリル基、2ーメチルー3ーイン ドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、 4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基、4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

# [0016]

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、nープチル基、sーブチル基、イソブチル基、tーブチル基、nーペンチル基、nーペキシル基、nーペプチル基、nーオクチル基、ヒドロキシメチル基、1ーヒドロキシエチル基、2ーヒドロキシエチル基、1,2ージヒドロキシエチル基、1,3ージヒドロキシイソプロピル基、2,3ージヒドロキシーtーブチル基、1,2,3ートリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1ークロロエチル基、2ークロロエチル基、2ークロロエチル基、2ークロロエチル基、2ークロロエチル基、2ークロロエチル基、2ークロロイソプロピル基、2,3ージクロローtーブチル基、1,2,3ージクロロイソプロピル基、2,3ージクロローtーブチル基、1,2,3ー



トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチ ル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモエチル基、1,3-ジブロモ イソプロピル基、2,3ージブロモーtーブチル基、1,2,3ートリブロモプ ロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨ ードイソブチル基、1,2-ジョードエチル基、1,3-ジョードイソプロピル 基、2,3-ジョードーtーブチル基、1,2,3-トリョードプロピル基、ア ミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチ ル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノー t ーブチル基、1,2,3ートリアミノプロピル基、シアノメチル基 、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1.2 ージシアノエチル基、1,3-ジシアノイソプロピル基、2,3-ジシアノーt -ブチル基、1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロ エチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1,2-ジニトロエ チル基、1,3-ジニトロイソプロピル基、2,3-ジニトローtーブチル基、 1, 2, 3-トリニトロプロピル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シク ロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマン チル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙 げられる。

# [0017]

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基は一〇Yで表される基であり、Yの例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n ーブチル基、 s ーブチル基、イソブチル基、 t ーブチル基、 n ーペンチル基、 n ーペンチル基、 n ーペンチル基、 n ーペーキシル基、 n ーペプチル基、 n ーオクチル基、 とドロキシメチル基、 1 ーヒドロキシエチル基、 2 ーヒドロキシエチル基、 2 ーヒドロキシイソブチル基、 1 , 2 ージヒドロキシエチル基、 1 , 3 ージヒドロキシイソプロピル基、 2 , 3 ージヒドロキシー t ーブチル基、 1 , 2 , 3 ートリヒドロキシプロピル基、 クロロメチル基、 1 , 2 ージクロロエチル基、 2 , 3 ージクロロイソプチル基、 1 , 2 ージクロロエチル基、 1 , 3 ージクロロイソプロピル基、 2 , 3 ージクロロー t ーブチル基、 1 , 2 , 3 ートリクロロプロピル基、 ブロモメチル基、 1



ーブロモエチル基、2ーブロモエチル基、2ーブロモイソブチル基、1,2ージプロモエチル基、1,3ージプロモイソプロピル基、2,3ージプロモーtーブチル基、1,2,3ートリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1ーヨードエチル基、2ーヨードエチル基、2ーヨードエチル基、2ーヨードイソプチル基、1,2ージヨードエチル基、1,3ージョードイソプロピル基、2,3ードーtーブチル基、1,2,3ートリヨードプロピル基、アミノメチル基、1ーアミノエチル基、2ーアミノエチル基、2ーアミノエチル基、2ーアミノエチル基、1,3ージアミノイソプロピル基、2,3ージアミノーtーブチル基、1,2,3ートリアミノプロピル基、シアノメチル基、1ーシアノエチル基、2ーシアノエチル基、2ーシアノエチル基、2ーシアノエチル基、2ーシアノエチル基、1,3ージシアノイソプロピル基、2,3ージシアノーtーブチル基、1,2,3ートリシアノプロピル基、2,3ージシアノーtーブチル基、1,2,3ートリシアノプロピル基、2ーニトロエチル基、2ーニトロエチル基、2ーニトロイソプロピル基、2,3ージニトロイソプロピル基、2,3ージニトローtーブチル基、1,2,3ートリニトロプロピル基、3ージニトローtーブチル基、1,2,3ートリニトロプロピル基等が挙げられる。

# [0018]

置換もしくは無置換の炭素数  $1 \sim 5$ 0のアラルキル基の例としては、ベンジル基、1 - 7ェニルエチル基、2 - 7ェニルエチル基、1 - 7ェニルイソプロピル基、2 - 7ェニルー1 - 7年ル基、2 - 7ェニルイソプロピル基、2 - 7ェニルー1 - 7年ル基、2 - 7年ルメチル基、2 - 7年ルエチル基、2 - 7年ルエチル基、2 - 7年ルエチル基、2 - 7年ルイソプロピル基、2 - 7年の中のアラルイソプロピル基、2 - 7年の中のアラルイソプロピル基、2 - 7年の中のアラルイソプロピル基、2 - 7年のアラーを表現している。2 - 7年ののでは、2 - 7年のでは、2 - 7年ののでは、2 - 7年ののでは、2 - 7年のでは、2 - 7



p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシー2-フェニルイソプロピル基、1-クロロー2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

### [0019]

置換もしくは無置換の炭素数5~50のアリールオキシ基は-〇Y'と表され 、Y'の例としてはフェニル基、1ーナフチル基、2ーナフチル基、1ーアント リル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フ ェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナン トリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1 -ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニルー4-イル基、p - ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニ ルー4-イル基、m-ターフェニルー3-イル基、m-ターフェニルー2-イル 基、 o ートリル基、mートリル基、 p ー t ーブチルフェニル基、 p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチルー1ーナフチル基、4ーメチルー1ーアントリル基、4, ーメチルビフェ ニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル 基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4 -ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5 -インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基 、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾ フラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフ ラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベ ンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3ーキノリル基、4ーキノリル基、5ーキノリル基、6ーキノリル 基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル



基、4ーイソキノリル基、5ーイソキノリル基、6ーイソキノリル基、7ーイソ キノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル 基、6ーキノキサリニル基、1ーカルバゾリル基、2ーカルバゾリル基、3ーカ ルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナン スリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フ ェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、 9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基 、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリ ジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン -3-イル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロ リンー5ーイル基、1,7ーフェナンスロリンー6ーイル基、1,7ーフェナン スロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9-イル基、1,7-フェ ナンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8 ーフェナンスロリンー3ーイル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1 , 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基 、1,8-フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9-イ ル基、1,8-フェナンスロリン-10-イル基、1,9-フェナンスロリン-2-イル基、1,9-フェナンスロリン-3-イル基、1,9-フェナンスロリ ンー4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンス ロリンー6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナ ンスロリン-8-イル基、1,9-フェナンスロリン-10-イル基、1,10 ーフェナンスロリンー2ーイル基、1,10ーフェナンスロリン-3ーイル基、 1,10-フェナンスロリン-4-イル基、1,10-フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-1-イル基、2,9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリ シー5-イル基、2,9-フェナンスロリン-6-イル基、2,9-フェナンス ロリン-7-イル基、2,9-フェナンスロリン-8-イル基、2,9-フェナ ンスロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、2,8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロリン-4-イル基、2,

8~フェナンスロリンー5~イル基、2,8一フェナンスロリンー6~イル基、 2,8-フェナンスロリンー7-イル基、2,8-フェナンスロリン-9-イル 基、2,8-フェナンスロリン-10-イル基、2,7-フェナンスロリン-1 ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー3ーイル基、2, 7ーフェナンスロリン -4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロ リンー6ーイル基、2,7ーフェナンスロリンー8ーイル基、2,7ーフェナン スロリン-9-イル基、2、7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナ ジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニ ル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニ ル基、2ーフェノキサジニル基、3ーフェノキサジニル基、4ーフェノキサジニ ル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オ キサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル 基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル 基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロールー4ーイル基、3ーメチルピロールー5ーイル基、2ーtーブチ ルピロールー4ーイル基、3ー(2ーフェニルプロピル)ピロールー1ーイル基 、2-メチルー1-インドリル基、4-メチルー1-インドリル基、2-メチル ー3-インドリル基、4-メチルー3-インドリル基、2-t-ブチル1-イン ドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基 、4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

#### [0020]

置換もしくは無置換の炭素数5~50のアリールチオ基は-SY"と表され、Y"の例としてはフェニル基、1ーナフチル基、2ーナフチル基、1ーアントリル基、2ーアントリル基、9ーアントリル基、1ーフェナントリル基、2ーフェナントリル基、3ーフェナントリル基、4ーフェナントリル基、9ーフェナントリル基、1ーナフタセニル基、2ーナフタセニル基、1ーピレニル基、2ーピレニル基、4ーピレニル基、2ーピフェニルイル基、3ーピフェニルイル基、4ーピフェニルイル基、pーターフェニルー4ーイル基、pー



ターフェニルー3-イル基、p-ターフェニルー2-イル基、m-ターフェニル - 4 - イル基、m - ターフェニル - 3 - イル基、m - ターフェニル - 2 - イル基 、oートリル基、mートリル基、pートリル基、pーtーブチルフェニル基、p - (2-フェニルプロピル) フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メ チルー1ーナフチル基、4ーメチルー1ーアントリル基、4'ーメチルビフェニ ルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基 、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2ーインドリル基、3ーインドリル基、4ーインドリル基、5ー インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、 3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イ ソインドリル基、7ーイソインドリル基、2ーフリル基、3ーフリル基、2ーベ ンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフ ラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラ ニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベン ゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キ ノリル基、3ーキノリル基、4ーキノリル基、5ーキノリル基、6ーキノリル基 、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基 、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキ ノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基 、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カル バゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンス リジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェ ナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9 ーフェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、 2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジ ニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリ ンー5-イル基、1,7-フェナンスロリン-6-イル基、1,7-フェナンス ロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9-イル基、1,7-フェナ



ンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8ーフェナンスロリンー5ーイル基、1,8ーフェナンスロリンー6ーイル基、 1,8-フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9-イル 墨、1,8-フェナンスロリンー10-イル基、1,9-フェナンスロリン-2 ーイル基、1,9ーフェナンスロリンー3ーイル基、1,9ーフェナンスロリン -4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロ リンー6ーイル基、1、9ーフェナンスロリンー7ーイル基、1、9ーフェナン スロリンー8ーイル基、1,9ーフェナンスロリンー10ーイル基、1,10ー フェナンスロリン-2-イル基、1,10-フェナンスロリン-3-イル基、1 , 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イ ル基、2,9-フェナンスロリン-1-イル基、2,9-フェナンスロリン-3 ーイル基、2,9ーフェナンスロリン-4-イル基、2,9-フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリンー6 - イル基、2, 9 - フェナンスロ リンー7ーイル基、2、9ーフェナンスロリンー8ーイル基、2、9ーフェナン スロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、2,8-フ ェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロリン-4-イル基、2,8 ーフェナンスロリンー5ーイル基、2,8ーフェナンスロリンー6ーイル基、2 ,8-フェナンスロリン-7-イル基、2,8-フェナンスロリン-9-イル基  $x_1$ 、2,8-フェナンスロリンー10-イル基 $x_1$ 2,7-フェナンスロリンー1-イル基、2,7ーフェナンスロリンー3ーイル基、2,7ーフェナンスロリンー 4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリ シー6ーイル基、2, 7ーフェナンスロリン-8-イル基、2, 7ーフェナンス ロリンー9-イル基、2,7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジ ニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル 基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル 基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル 基、2ーオキサゾリル基、4ーオキサゾリル基、5ーオキサゾリル基、2ーオキ サジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基



、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基 、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基、2-大・ブチル-1-インドリル基等が挙げられる。

### [0021]

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシカルボニル基は-COOZ と表され、2の例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、 n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2ーヒドロキシエチル基、2ーヒドロキシイソブチル基、 1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3 ージヒドロキシー t ープチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロ ロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル 基、1、2-ジクロロエチル基、1、3-ジクロロイソプロピル基、2、3-ジ クロロー t ープチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、 1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモエチル基、1,3ージブロモイソプロピル基、2,3ージブロモーtー ブチル基、1,2,3ートリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエ チル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジョードエチ ル基、1,3-ジョードイソプロピル基、2,3-ジョードーt-ブチル基、1 ,2,3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2ーアミノイソブチル基、1,2ージアミノエチル基、1,3 ージアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノーtーブチル基、1,2,3-ト リアミノプロピル基、シアノメチル基、1ーシアノエチル基、2ーシアノエチル



基、2ーシアノイソブチル基、1,2ージシアノエチル基、1,3ージシアノイソプロピル基、2,3ージシアノーtーブチル基、1,2,3ートリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1ーニトロエチル基、2ーニトロエチル基、2ーニトロイソブチル基、1,2ージニトロエチル基、1,3ージニトロイソプロピル基、2,3ージニトローtーブチル基、1,2,3ートリニトロプロピル基等が挙げられる。

### [0022]

置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基で置換されたアミノ基は -NPQと表わされ、P、Qの例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フ エナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナン トリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、 9ーナフタセニル基、1ーピレニル基、2ーピレニル基、4ーピレニル基、2ー ビフェニルイル基、3ービフェニルイル基、4ービフェニルイル基、pーターフ エニルー4ーイル基、pーターフェニルー3ーイル基、pーターフェニルー2ー イル基、m-ターフェニルー4ーイル基、m-ターフェニルー3ーイル基、m-ターフェニルー2ーイル基、oートリル基、mートリル基、pートリル基、pー tーブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル -2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル 基、4'ーメチルビフェニルイル基、4"ーtーブチルーp-ターフェニルー4 ーイル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基 、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基 、4ーインドリル基、5ーインドリル基、6ーインドリル基、7ーインドリル基 、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル 基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾ フラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニ ル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾ フラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソ



ベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キ ノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリ ル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イ ソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル 基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリ ジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナ ンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル 基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アク リジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1 , 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基 、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イ ル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9 ーイル基、1,7ーフェナンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロリ ン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンス ロリンー4ーイル基、1,8ーフェナンスロリンー5ーイル基、1,8ーフェナ ンスロリンー6ーイル基、1,8ーフェナンスロリンー7ーイル基、1,8-フ ェナンスロリンー9ーイル基、1,8ーフェナンスロリン-10ーイル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1,9-フェナンスロリン-3-イル基、 1. 9-フェナンスロリンー4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル 基、1,9-フェナンスロリンー6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9ーフェナンスロリン-8-イル基、1,9ーフェナンスロリン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2-イル基、1,10-フェナン スロリンー3ーイル基、1,10ーフェナンスロリンー4ーイル基、1,10ー フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2,9-フェナンスロリン-4-イル基、 2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル 基、2、9ーフェナンスロリンー7ーイル基、2、9ーフェナンスロリンー8ー



イル基、2,9-フェナンスロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン -1-イル基、2,8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロ リンー4ーイル基、2,8ーフェナンスロリンー5ーイル基、2,8ーフェナン スロリンー6ーイル基、2,8ーフェナンスロリンー7ーイル基、2,8ーフェ ナンスロリン-9-イル基、2,8-フェナンスロリン-10-イル基、2,7 ーフェナンスロリンー1ーイル基、2,7ーフェナンスロリンー3ーイル基、2 , 7-フェナンスロリンー4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基 、2,7-フェナンスロリンー6-イル基、2,7-フェナンスロリン-8-イ ル基、2, 7ーフェナンスロリンー9ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー1 0-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル 基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル 基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル 基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2ーオキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラ ザニル基、2ーチエニル基、3ーチエニル基、2ーメチルピロールー1ーイル基 、2-メチルピロールー3-イル基、2-メチルピロールー4-イル基、2-メ チルピロールー5ーイル基、3ーメチルピロールー1ーイル基、3ーメチルピロ ールー2ーイル基、3ーメチルピロールー4ーイル基、3ーメチルピロールー5 -イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル )ピロールー1ーイル基、2-メチルー1-インドリル基、4-メチルー1-イ ンドリル基、2-メチルー3-インドリル基、4-メチルー3-インドリル基、 2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3ーインドリル基、4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。P 、Qはそれぞれ同一であっても異なっていても良い。

# [0023]

前記置換基は、置換基同士で環を形成していてもよく、環を形成する2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'ージイル基、ジフェニルエタン-3, 3'ージイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'ージイル基等が挙げられる。



ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

# [0024]

本発明の一般式(1)で表される芳香族アミン誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。なお、Meはメチル基、iPrはイソプロピル基を示す。

# 【化7】

[0025]



[0026]



【化9】



# 【化10】

### [0028]

次に、本発明の有機EL素子について説明する。

本発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する。

本発明の有機EL素子は、前記有機薄膜層が正孔輸送帯域を有し、該正孔輸送 帯域が、本発明の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有す ると好ましく、また、前記有機薄膜層が正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、本 発明の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有するとさらに 好ましい。さらに、前記正孔輸送層が、主成分として本発明の芳香族アミン誘導 体を含有すると好ましい。

### [0029]



以下、本発明の有機EL素子の素子構成について説明する。

(1) 有機EL素子の構成

本発明の有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (1) 陽極/発光層/陰極
- (2) 陽極/正孔注入層/発光層/陰極
- (3) 陽極/発光層/電子注入層/陰極
- (4) 陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極
- (5) 陽極/有機半導体層/発光層/陰極
- (6) 陽極/有機半導体層/電子障壁層/発光層/陰極
- (7) 陽極/有機半導体層/発光層/付着改善層/陰極
- (8) 陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子注入層/陰極
- (9) 陽極/絶縁層/発光層/絶縁層/陰極
- (10)陽極/無機半導体層/絶縁層/発光層/絶縁層/陰極
- (11)陽極/有機半導体層/絶縁層/発光層/絶縁層/陰極
- (12)陽極/絶縁層/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/絶縁層/陰極
- (13)陽極/絶縁層/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子注入層/陰極などの構造を挙げることができる。

これらの中で通常(8)の構成が好ましく用いられるが、これらに限定されるものではない。

本発明の芳香族アミン誘導体は、有機EL素子のどの有機薄膜層に用いてもよいが、発光帯域又は正孔輸送帯域に用いることができ、好ましくは正孔輸送帯域、特に好ましくは正孔輸送層に用いることにより、分子が結晶化しにくく、有機 EL素子を製造する際の歩留りが向上する。

本発明の芳香族アミン誘導体を、有機薄膜層に含有させる量としては、30~100モル%が好ましい。

[0030]

#### (2) 透光性基板

本発明の有機EL素子は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、400~700 nmの可視領域の光の透



過率が50%以上で平滑な基板が好ましい。

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等が挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。

# [0031]

#### (3)陽極

本発明の有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する機能を有するものであり、4.5 e V以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金 (ITO)、酸化錫 (NESA)、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成 させることにより作製することができる。

このように発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 $\Omega$ / $\square$ 以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10nm $\sim$ 1 $\mu$ m、好ましくは10 $\sim$ 200nmの範囲で選択される。

#### [0032]

#### (4) 発光層

有機EL素子の発光層は以下①~③の機能を併せ持つものである。

- ①注入機能;電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、 陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能
- ②輸送機能;注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能
- ③発光機能;電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能 ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく 、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちら か一方の電荷を移動することが好ましい。



この発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着 剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等によ り薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

本発明においては、本発明の目的が損なわれない範囲で、所望により発光層に本発明の芳香族アミン誘導体からなる発光材料以外の他の公知の発光材料を含有させてもよく、また、本発明の芳香族アミン誘導体からなる発光材料を含む発光層に、他の公知の発光材料を含む発光層を積層してもよい。

### [0033]

# (5) 正孔注入·輸送層(正孔輸送帯域)

正孔注入・輸送層は発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常 5.5 eV以下と小さい。このような正孔注入・輸送層としては、より低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば  $10^4 \sim 10^6 V/cm$ の電界印加時に、少なくとも  $10^{-4} cm^2/V$ ・秒であれば好ましい。

本発明の芳香族アミン誘導体を正孔輸送帯域に用いる場合、本発明の芳香族アミン誘導体単独で正孔注入、輸送層を形成してもよく、他の材料と混合して用いてもよい。

本発明の芳香族アミン誘導体と混合して正孔注入、輸送層を形成する材料としては、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。



### [0034]

具体例としては、トリアゾール誘導体(米国特許3,112,197号明細書 等参照)、オキサジアゾール誘導体(米国特許3,189,447号明細書等参 照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ポリアリ ールアルカン誘導体(米国特許3,615,402号明細書、同第3,820, 989号明細書、同第3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報 、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-171 05号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同 56-36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体 及びピラゾロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細書、同第4,27 8,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公 報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-800 5 1 号公報、同 5 6 - 8 8 1 4 1 号公報、同 5 7 - 4 5 5 4 5 号公報、同 5 4 -1 1 2 6 3 7号公報、同 5 5 - 7 4 5 4 6 号公報等参照)、フェニレンジアミン 誘導体(米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公 報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-534 35号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照 )、アリールアミン誘導体(米国特許第3,567,450号明細書、同第3, 180,703号明細書、同第3,240,597号明細書、同第3,658, 520号明細書、同第4,232,103号明細書、同第4,175,961号 明細書、同第4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同 39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-1191 3 2 号公報、同 5 6 - 2 2 4 3 7 号公報、西独特許第 1 . 1 1 0 . 5 1 8 号明細 書等参照)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3,526,501号明細 **書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3,257,203号明細書等に** 開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等 参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒド ラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-5914 3号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-4



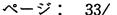
6760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同第61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93455号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4,950,950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。

### [0035]

正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-2956965号公報等に開示のもの)、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物(米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

また、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'ービス(Nー(1ーナフチル)-Nーフェニルアミノ)ビフェニル(以下NPDと略記する)、また特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4"ートリス(Nー(3ーメチルフェニル)-Nーフェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下MTDATAと略記する)等を挙げることができる。

さらに、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリディン系化合物の他、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用すること





ができる。

### [0036]

正孔注入・輸送層は本発明の芳香族アミン誘導体を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入・輸送層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm~5μmである。この正孔注入・輸送層は、正孔輸送帯域に本発明の芳香族アミン誘導体を含有していれば、上述した材料の一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよく、前記正孔注入・輸送層とは別種の化合物からなる正孔注入・輸送層を積層したものであってもよい。

また、発光層への正孔注入又は電子注入を助ける層として有機半導体層を設けてもよく、 $10^{-10}$  S/c m以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや特開平8-193191号公報に開示してある含アリールアミンオリゴマー等の導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマー等の導電性デンドリマー等を用いることができる

## [0037]

#### (6)電子注入層

電子注入層・輸送層は、発光層への電子の注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、電子移動度が大きく、また、付着改善層は、この電子注入層の中で特に陰極との付着性がよい材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体が好適である。

この8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシン(一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられ、例えばトリス(8-キノリノール)アルミニウム(Ala)を電子注入材料として用いることができる。

また、オキサジアゾール誘導体としては、以下の一般式で表される電子伝達化 合物が挙げられる。

#### [0038]



【化11】

$$Ar^{\frac{1}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{2}{2}}$$
 $Ar^{\frac{3}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{4}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{5}{2}}$ 
 $Ar^{\frac{6}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{7}{2}} \bigcirc Ar^{\frac{8}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{9}{2}}$ 

#### [0039]

ここでアリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基が挙げられ、アリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。この電子伝達化合物は薄膜形成性のものが好ましい。

この電子伝達性化合物の具体例としては下記のものを挙げることができる。

[0040]



【化12】

## [0041]

また、本発明の有機EL素子は、電子を輸送する領域又は陰極と有機薄膜層の界面領域に、還元性ドーパントを含有していてもよい。ここで、還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元ができる物質と定義される。したがって、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属のアルカリ土類金属のアルカリ土類金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体がらなる群から選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

# [0042]

好ましい還元性ドーパントの具体例としては、Na (仕事関数: 2.36 e V)、K (仕事関数: 2.28 e V)、Rb (仕事関数: 2.16 e V)及びCs (仕事関数: 1.95 e V)からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属や、Ca (仕事関数: 2.9 e V)、Sr (仕事関数: 2.0~2.5 e V)、及びBa (仕事関数: 2.52 e V)からなる群から選択される少なくと



も一つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2.9eV以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、Rb及びCsからなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属であり、さらに好ましくは、Rb又はCsであり、最も好ましのはCsである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。また、仕事関数が2.9eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組合わせも好ましく、特に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRb又はCsとNaとKとの組み合わせであることが好ましい。Csを組み合わせて含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

#### [0043]

本発明の有機EL素子は、陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けてもよい。これにより、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができるため好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、Li2〇、Li〇、Na2S、Na2Se及びNa〇が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、Ca〇、BaO、SrO、BeO、BaS及びCaSeが挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、LiF、NaF、KF、LiC1、KC1及びNaC1等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、CaF2、SェF2、MgF2及びBeF2といったフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

#### [0044]

また、電子輸送層を構成する半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al

、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

#### [0045]

## (7) 陰極

陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入するため、仕事関数の小さい (4 e V以下) 金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム・カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。

この陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。

ここで発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。

また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega$ / $\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常 10  $nm\sim 1~\mu$ m、好ましくは  $50\sim 200$  nmである。

#### [0046]

#### (8)絶縁層

有機EL素子は超薄膜に電界を印可するために、リークやショートによる画素 欠陥が生じやすい。これを防止するために、一対の電極間に絶縁性の薄膜層を挿 入することが好ましい。

絶縁層に用いられる材料としては例えば酸化アルミニウム、弗化リチウム、酸 化リチウム、弗化セ シウム、酸化セシウム、酸化マグネシウム、弗化マグネシ



ウム、酸化カルシウム、弗化カルシウム、窒化アルミニウム、酸化チタン、酸化 珪素、酸化ゲルマニウム、窒化珪素、窒化ホウ素、酸化モリブデン、酸化ルテニ ウム、酸化バナジウム等が挙げられ、これらの混合物や積層物を用いてもよい。

#### [0047]

## (9) 有機EL素子の製造方法

以上例示した材料及び形成方法により陽極、発光層、必要に応じて正孔注入・輸送層、及び必要に応じて電子注入・輸送層を形成し、さらに陰極を形成することにより有機EL素子を作製することができる。また陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

以下、透光性基板上に陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。

まず、適当な透光性基板上に陽極材料からなる薄膜を 1 μ m以下、好ましくは 1 0~2 0 0 n mの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して陽極を作製する。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度 5 0~4 5 0 ℃、真空度 1 0 -7~1 0 -3 t o r r、蒸着速度 0 . 0 1~5 0 n m / 秒、基板温度 - 5 0~3 0 0 ℃、膜厚 5 n m~5 μ m の範囲で適宜選択することが好ましい。

#### [0048]

次に、正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を 用いて真空蒸着法、スパッタリング、スピンコート法、キャスト法等の方法によ り有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく 、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好 ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合 物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じような条件範囲の中から選択する



ことができる。

次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は正孔注入層、発光層と同様の条件範囲から選択することができる。

本発明の芳香族アミン誘導体は、発光帯域や正孔輸送帯域のいずれの層に含有させるかによって異なるが、真空蒸着法を用いる場合は他の材料との共蒸着をすることができる。また、スピンコート法を用いる場合は、他の材料と混合することによって含有させることができる。

最後に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。

陰極は金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし下地の有機物層を製膜時の損傷から守るためには真空蒸着法が好ましい。

この有機EL素子の作製は一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

## [0049]

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる、前記一般式(1)で示される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスティング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、5~40 Vの電圧を印加すると発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には陽極が+、陰極が-の極性になった時のみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。





#### 【実施例】

次に、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例 1 (N, N-ジフェニルー1-アミノーN, N-ジービフェニリルー4-アミノベンゼン(H1)の合成)

(1) ジー4ービフェニリルアミンの合成

100 ミリリットルの三つ口フラスコに4ープロモビフェニル10.0g (東京化成社品)、tープトキシナトリウム4.32g (和光純薬社製)、酢酸パラジウム42mg (和光純薬社製)を入れた。さらに攪拌子を入れ、フラスコの両側にラバーキャップをセットし、中央の口に還流用蛇管、その上に三方コックとアルゴンガスを封入した風船をセットし、系内を真空ポンプを用いて3回、風船内のアルゴンガスで置換した。

次に、脱水トルエン60ミリリットル(和光純薬社製)、ベンジルアミン2.04ミリリットル(東京化成社製)、トリスー t ーブチルホスフィン 169  $\mu$  リットル(アルドリッチ社製、2.22mol/リットルトルエン溶液)をシリンジでラバーセプタムを通して加え、5 分間室温で攪拌した。

次にフラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に 120℃まで 昇温した。7時間後、オイルバスからフラスコを外し反応を終了させ、アルゴン 雰囲気下、12時間放置した。

反応溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタン 300ミリリットルを加えて沈殿物を溶解させ、飽和食塩水60ミリリットルで洗浄後、有機層を無水炭酸カリウムで乾燥した。炭酸カリウムを濾別して得られた有機層の溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン 200ミリリットル、エタノール40ミリリットルを加え、乾燥管を付けて80℃に加熱し、残渣を完全に溶解した。その後12時間放置し、室温まで除冷することにより再結晶化させた。

析出した結晶を濾別し、60℃で真空乾燥することにより6.73g のN, Nージー(4ービフェニリル) ーベンジルアミンを得た。

300ミリリットルの一口フラスコに、 1.35gのN, N-ジー (4-ビフェニリ



ル) ーベンジルアミン、パラジウムー活性炭素135mg (和光純薬社製、パラジウム含有量10重量%)を入れ、クロロホルム 100ミリリットル、エタノール20ミリリットルを加えて溶解した。

次に、フラスコに攪拌子を入れた後、水素ガス2リットルが充填された風船を装着した三方コックをフラスコに取り付け、真空ポンプを用いてフラスコ系内を水素ガスで10回置換した。減った水素ガスを新たに充填し、水素ガスの容積を再び2リットルにした後、室温で激しく溶液を攪拌した。30時間攪拌後、ジクロロメタン 100ミリリットルを加え、触媒を濾別した。

次に、得られた溶液を分液ロートに移し、炭酸水素ナトリウム飽和水溶液50ミリリットルで洗浄後、有機層を分別し、無水炭酸カリウムで乾燥した。濾過後、溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン50ミリリットルを加え、再結晶化させた。析出した結晶を濾別し、50℃で真空乾燥することにより0.99g のジー4ービフェニリルアミンを得た。

#### [0051]

# (2) 4-ブロモーN, N-ジービフェニリルアニリンの合成

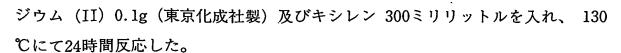
アルゴン気流下、上記(1)で得られたジー4ービフェニリルアミン10g、1, 4ージブロモベンゼン7.3g(東京化成社製)、tーブトキシナトリウム3g(広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0.5g(東京化成社製)及びキシレン 500ミリリットルを入れ、 130 にて24時間反応した。

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、8.1gの4ープロモーN, Nージービフェニリルアニリンが得られた。

## [0052]

## (3) 化合物 (H1) の合成

アルゴン気流下、上記(2)で得られた4-ブロモーN, N-ジービフェニリルアニリン2g、N, N-ジフェニルアミン1g (東京化成社製)、t-ブトキシナトリウム0.5g (広島和光社製)、ビス (トリフェニルホスフィン) 塩化パラ



冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.6gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS(フィールドディソープションマススペクトル)分析により、 $C_{42}H_{32}N_2=564$  に対し、m/z=564 の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニルー1-アミノーN, N-ジービフェニリルー4-アミノベンゼン (H1) と同定した。

## [0053]

実施例 2 (N, Nージフェニルー4ーアミノーN', N'ージービフェニリルー 4'ーアミノー1, 1'ービフェニル (H 2) の合成)

(1) 4' -ブロモ-N, N-ジービフェニリル-4-アミノ-1, 1' -ビフェニルの合成

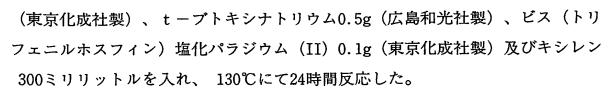
アルゴン気流下、実施例 1 の(1)で得られたジー4 ービフェニリルアミン10 g(東京化成)、4 , 4 ' ージブロモビフェニル9.7g(東京化成社製)、t ープトキシナトリウム 3g (広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0.5g(東京化成社製)及びキシレン 500ミリリットルを入れ、130  $\mathbb{C}$  にて24 時間反応した。

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9.1gの4'ープロモーN, Nージービフェニリルー4ーアミノー1, 1'ービフェニルが得られた。

#### [0054]

#### (2) 化合物(H2)の合成

アルゴン気流下、上記(1)で得られた 4' ープロモーN, N ージービフェニリルー 4 ーアミノー 1, 1' ービフェニル 2.3g、N, N ージフェニルアミン 1g



冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.6gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{48}H_{36}N_2=640$  に対し、m/z=640 の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニルー4-アミノーN', <math>N'-ジービフェニリルー4'-アミノー1, 1'-ビフェニル( $H_2$ )と同定した。

#### [0055]

実施例 3 (N, N-ジフェニルー4-アミノー<math>N", N" -ジービフェニリルー4"-アミノー<math>p-ターフェニル(H3) の合成)

(1) 4" ープロモーN, Nージービフェニリルー4ーアミノーpーターフェニルの合成

アルゴン気流下、ジー 4-ビフェニリルアミン10g (東京化成)、4 , 4 " - ジブロモーp-ターフェニル12.1g (ランカスター社製)、t-ブトキシナトリウム3g (広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II) 0.5g (東京化成社製)及びキシレン 500ミリリットルを入れ、 130  $^{\circ}$  にて24時間反応した。

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9.4gの4" -ブロモーN, N-ジービフェニリル-4-アミノーp-9-フェニルが得られた。

#### [0056]

## (2) 化合物(H3)

アルゴン気流下、上記 (1) で得られた4" - ブロモーN, N - ジービフェニ



リルー4ーアミノーp-9ーフェニル2.6g、N, N-ジフェニルアミン <math>1g (東京化成社製)、tーブトキシナトリウム0.5g (広島和光社製)、ビス (トリフェニルホスフィン) 塩化パラジウム (II) 0.1g (東京化成社製) 及びキシレン 300ミリリットルを入れ、 130Cにて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.7gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、 ${\rm FD-MS}$ 分析により、 ${\rm C}_{54}{\rm H}_{40}{\rm N}_2$  =716 に対し、 ${\rm m}/z$  =716 の主ピークが得られたので、 ${\rm N}$  ,  ${\rm N}$  - ジフェニルー 4 - アミノー  ${\rm N}$  " ,  ${\rm N}$  " - ジービフェニリルー 4 " - アミノー  ${\rm p}$  - ターフェニル ( ${\rm H}$  3 )と同定した。

#### [0057]

実施例 4 (N, N, N'ートリフェニルー4ーアミノーN'ー (1ーナフチル) アミノー1, 1'ービフェニル (H4) の合成)

アルゴン気流下、実施例 2 の(1)で得られた 4' ーブロモーN, N ージービフェニリルー 4 ーアミノー 1, 1' ービフェニル 2 . 3g、N ーフェニル 1 ーナフチルアミン 1g (東京化成社製)、t ーブトキシナトリウム 0 . 5g (広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0 . 1g (東京化成社製)及びキシレン 300ミリリットルを入れ、 130 C にて 24 時間 反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、2.0gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{52}H_{38}N_2=690$  に対し、m/z=690 の主ピークが得られたので、N, N, N, N ートリフェニルー4ーアミノーN ー (1ーナフチル) アミノー1, 1 ービフェニル (H4) と同定した。

#### [0058]



実施例 5 (N, N, N'ートリフェニルー4ーアミノーN'ー (2ーナフチル) アミノー1, 1'ービフェニル (H 5) の合成)

アルゴン気流下、実施例 2 の(1)で得られた 4'ープロモーN,Nージービフェニリルー4ーアミノー1,1'ービフェニル2.3g、Nーフェニル 2ーナフチルアミン1g(東京化成社製)、t-ブトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0.1g(東京化成社製)及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130  $\mathbb{C}$  にて24 時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.9gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{52}H_{38}N_2=690$  に対し、m/z=690 の主ピークが得られたので、N, N, N, N ートリフェニルー4ーアミノーN ー (2ーナフチル) アミノー1, 1 ービフェニル ( $H_5$ ) と同定した。

### [0059]

実施例 6 (N, N-ジフェニルー4-アミノーN',N' ージー(4' ーメチルー4-ビフェニリル) -4' -アミノー1, 1' -ビフェニル (H 6) の合成)

(1) 4-ヨードー4'ーメチルビフェニルの合成

4-メチルビフェニル75g (東京化成社製)とオルト過ヨウ素酸19.2g (和光純薬社製)とヨウ素64.3g (和光純薬社製)と酢酸 230ミリリットルと濃硫酸 7.6ミリリットルを入れ、70Cで 2 時間反応した。

反応後、室温まで冷却し、メタノール 850ミリリットルに攪拌下注入し、析出結晶を濾取し、得られた結晶をアセトニトリル 2.1リットルにて再結晶し、73g の4-ヨードー4'ーメチルビフェニルを得た。

## [0060]

(2) ジー(4'ーメチルー4ービフェニリル)アミンの合成

100ミリリットルの三つ口フラスコに、上記(1)で得られた4-ヨード-4 '-メチルビフェニル10.0g、tーブトキシナトリウム4.32g (和光純薬社製)



、酢酸パラジウム42mg(和光純薬社製)を入れた。さらに攪拌子を入れ、フラスコの両側にラバーキャップをセットし、中央の口に還流用蛇管、その上に三方コックとアルゴンガスを封入した風船をセットし、系内を真空ポンプを用いて3回、風船内のアルゴンガスで置換した。

次に、脱水トルエン60ミリリットル(和光純薬社製)、ベンジルアミン2.04ミリリットル(東京化成社製)、トリスー t ープチルホスフィン 169  $\mu$  リットル(アルドリッチ社製、2.22mo1/リットルトルエン溶液)をシリンジでラバーセプタムを通して加え、5 分間室温で攪拌した。

次にフラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に 120℃まで昇温した。7時間後、オイルバスからフラスコを外し反応を終了させ、アルゴン雰囲気下、12時間放置した。

反応溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタン 300ミリリットルを加えて沈殿物を溶解させ、飽和食塩水60ミリリットルで洗浄後、有機層を無水炭酸カリウムで乾燥した。炭酸カリウムを濾別して得られた有機層の溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン 200ミリリットル、エタノール40ミリリットルを加え、乾燥管を付けて80℃に加熱し、残渣を完全に溶解した。その後12時間放置し、室温まで除冷することにより再結晶化させた。

析出した結晶を濾別し、60℃で真空乾燥することにより6.12g のN, N-ジ-(4'-メチル-4-ビフェニリル)ーベンジルアミンを得た。

300 ミリリットルの一口フラスコに、1.35g のN, Nージー(4'ーメチルー4ービフェニリル)ーベンジルアミン、パラジウムー活性炭素135mg (和光純薬社製、パラジウム含有量10重量%)を入れ、クロロホルム 100ミリリットル、エタノール20ミリリットルを加えて溶解した。

次に、フラスコに攪拌子を入れた後、水素ガス 2 リットルが充填された風船を装着した三方コックをフラスコに取り付け、真空ポンプを用いてフラスコ系内を水素ガスで10回置換した。減った水素ガスを新たに充填し、水素ガスの容積を再び 2 リットルにした後、室温で激しく溶液を攪拌した。30時間攪拌後、ジクロロメタン 100ミリリットルを加え、触媒を濾別した。

次に、得られた溶液を分液ロートに移し、炭酸水素ナトリウム飽和水溶液50ミ



リリットルで洗浄後、有機層を分別し、無水炭酸カリウムで乾燥した。濾過後、溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン50ミリリットルを加え、再結晶化させた。析出した結晶を濾別し、50℃で真空乾燥することにより0.83g のジー(4'ーメチルー4ービフェニリル)アミンを得た。

## [0061]

#### (3) 化合物(H6)の合成

アルゴン気流下、実施例 2 の(1)で得られた 4'ーブロモーN,Nージービフェニリルー4ーアミノー1,1'ービフェニル2.3g、上記(2)で得られたジー(4'ーメチルー4ービフェニリル)アミン1.8g、tーブトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0.1g(東京化成社製)及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、2.3gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{62}H_{48}N_2=820$  に対し、m/z=821 の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニルー4-アミノーN', <math>N' -ジー (4' -メチルー4-ビフェニリル) -4' -アミノー1, 1' - ビフェニル (H 6) と同定した。

## [0062]

#### 実施例7

25mm×75mm×1.1mm 厚のITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック社製)をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着 し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うように して膜厚60nmのN, N'ービス (N, N'ージフェニルー4ーアミノフェニル) ーN, Nージフェニルー4, 4'ージアミノー1, 1'ービフェニル膜 (TPD



232膜)を成膜した。このTPD232膜は、正孔注入層として機能する。このTPD232膜上に正孔輸送材料として膜厚20nmの上記化合物(H1)層を成膜した。この膜は正孔輸送層として機能する。さらに、膜厚40nmの下記EM1を蒸着し成膜した。同時に発光分子として、下記のスチリル基を有するアミン化合物D1を、EM1:D1の重量比が40:2になるように蒸着した。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚10nmの下記A1q膜を成膜した。これは、電子注入層として機能する。この後、還元性ドーパントであるLi(Li源:サエスゲッター社製)とA1qを二元蒸着させ、電子注入層(又は陰極)としてA1q:Li膜(膜厚10nm)を形成した。このA1q:Li膜上に金属A1を蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を形成した。

得られた素子について電流密度  $1 \text{ mA/cm}^2$ における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

なお、化合物(H1)はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

[0063]

## 【化13】

[0064]

#### 実施例8

実施例7において、化合物(H1)の代わりに化合物(H2)を用いた以外は



得られた素子について電流密度  $1 \, \text{mA/cm}^2$  における発光効率を測定し、その結果を表  $1 \, \text{に示す}$ 。

なお、化合物(H2)はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

#### [0065]

#### 実施例 9

実施例7において、化合物 (H1) の代わりに化合物 (H3) を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた素子について電流密度  $1 \, \text{mA/cm}^2$ における発光効率を測定し、その結果を表  $1 \, \text{に示す}$ 。

なお、化合物(H3)はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

#### [0066]

#### 実施例10

実施例7において、化合物 (H1) の代わりに化合物 (H4) を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた素子について電流密度  $1 \, \text{mA/cm}^2$ における発光効率を測定し、その結果を表  $1 \, \text{に示す}$ 。

なお、化合物(H4)はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

## [0067]

#### 実施例11

実施例7において、化合物 (H1) の代わりに化合物 (H5) を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた素子について電流密度  $1 \text{ mA/cm}^2$ における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

なお、化合物(H5)はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。



## 実施例12

実施例7において、化合物 (H1) の代わりに化合物 (H6) を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた素子について電流密度  $1 \, \text{mA/cm}^2$ における発光効率を測定し、その結果を表  $1 \, \text{に示す}$ 。

なお、化合物(H 6)はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

## [0069]

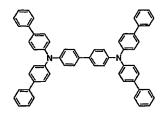
#### 比較例1

実施例 7 において、化合物(H 1)の代わりに下記N, N, N, N, N, N ーテトラ (4 - ビフェニル) - ジアミノビフェニレン(T B D B)を用いた以外は同様にして有機 E L 素子を作製した。

得られた素子について電流密度  $1 \, \text{mA/cm}^2$ における発光効率を測定し、その結果を表  $1 \, \text{に示す}$ 。

なお、TBDBは結晶性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部で結晶化し、連続的 に成膜することができなかった。

#### 【化14】



**TBDB** 

[0070]





## 【表1】

表 1			
	正孔輸送材料	発光効率(cd/A)	発光色
実施例7	H1	11.0	青
実施例8	H2	12.0	青
実施例9	нз	11.2	青
実施例10	H4	12.2	青
実施例11	H5	12.1	青
実施例12	H6	12.3	青
比較例1	TBDB	11.5	青

## [0071]

以上の結果から判るように、本発明の芳香族アミン誘導体を有機EL素子の正 孔輸送材料に用いた場合、従来用いられている材料と同等の発光効率で発光させ ることが可能な上、アモルファス性が高いことから、成膜時に蒸着源の開口部を 塞ぐことがなく、連続的に素子を成膜することができるため、有機EL素子の製 造歩留り向上に極めて有効であった。

## [0072]

## 【発明の効果】

以上、詳細に説明したように、本発明の芳香族アミン誘導体及びそれを用いた 有機EL素子は、高い発光効率を維持しつつ、分子が結晶化しにくく、有機EL 素子を製造する際の歩留りを向上させることができる。



#### 【書類名】 要約書

# 【要約】

【課題】 分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上 する芳香族アミン誘導体及び有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 非対称な構造を有する新規な芳香族アミン誘導体、並びに陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【選択図】 なし



特願2003-007762

# 出願人履歴情報

識別番号

[000183646]

1. 変更年月日 [変更理由] 住 所

氏 名

1990年 8月 8日

新規登録

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

出光興産株式会社